



PATENTVERKET

(44) Ansökan utlagd och utläggningskriften publicerad

90-08-13

(21) Patentansökningsnummer

8601546-8

(41) Ansökan allmänt tillgänglig

86-10-23

(22) Patentansökan inkom

86-04-07

(24) Löpdag

86-04-07

(62) Stamansökans nummer

(88) Internationell ingivningsdag

(86) Ingivningsdag för ansökan om europeiskt patent

(30) Prioritetsuppgifter

85-04-22 JP 60/86969

Ansökan inkommen som:



svensk patentansökan



fullföljd internationell patentansökan med nummer



omvandlad europeisk patentansökan med nummer

(71) SÖKANDE Seibu Giken Co Ltd Kasuya-gun JP
Tosimi Kuma Fukuoka-shi JP

(72) UPPFINNARE H Okano, T Kuma, Fukuoka-shi

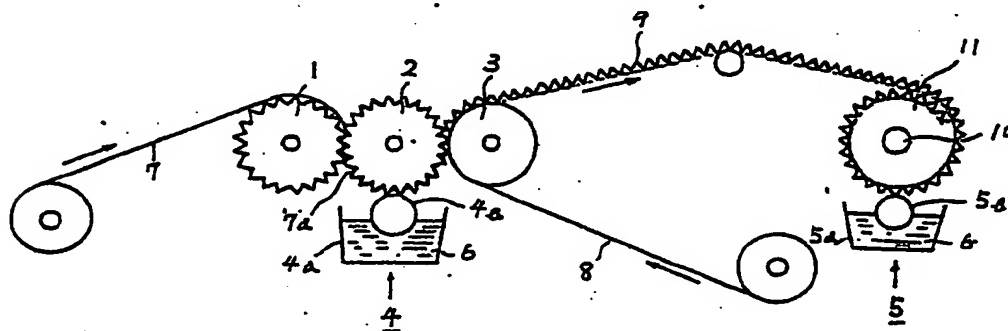
(74) OMBUD Delmar J-Å

(54) BENÄMNING Förfarande för framställning av ett fuktutbyteselement

(56) ANFÖRDA PUBLIKATIONER: SE A 8504494-9 (B01D 53/28), SE C 223 182 (B01D 53/26),
SE B 309 937 (C04B 39/08), SE B 381 250 (B01D 53/28)

(57) SAMMANDRAG:

Fuktutbyteselement avsedda att användas i avfuktare eller värmeväxlare framställs genom att man omväxlande laminerar vågpapper och planskiktspapper till ett element med många små kanaler genom motstående ytor. Båda papperen har låg densitet och består av oorganiska fibrer, såsom keramiska fibrer. Papperen impregneras med vattenglas före eller efter lamineringsprocessen. Den formade matrisen nedsänks i en vattenlösning av ett metallsalt, ett magnesiumsalt eller ett kalciumsalt för bildning av metallsilikat-hydrogel på papperet och i porerna mellan papperets fibrer. Den formade matrisen och metallsilikat-hydrogelet tvättas och torkas till bildning av ett starkt element, vars huvudbeståndsdel utgöres av metallsilikat-aerogel avsatt på matrisen av oorganiska fibrer.



Föreliggande uppfinning avser ett förfarande för framställning av ett fuktutbyteselement, såsom ett avfuktarelement, med hjälp av vilket man kontinuerligt kan erhålla avfuktad gas, såsom torr luft, genom att leda matargas och desorberingsgas omväxlande genom elementet. Elementet består av ett block med många små kanaler, och det är bildat av fast adsorptionsmedel som kan adsorbera fuktighet reversibelt. Detta element kan också användas såsom värmeväxlarelement för utbyte av total värmeenergi.

I den svenska patentansökan 8504494-9 beskrives ett förfarande för framställning av fuktutbyteselement, varvid planskiktsark och vågark av lågdensitetspapper av oorganiska fibrer, såsom keramiska fibrer, formas till ett block med många små kanaler. Pappersarken impregneras med vattenglaslösning före eller efter bildningen av blocket. Pappersarken eller blocket upphettas och torkas till dess att vattenglaslösningen koncentreras till hydratiserat vattenglas med en vattenhalt av 3-20%. Blocket nedsänkes därefter i en syralösning så att vattenglas och syran reagerar under bildning av silika-hydrogel. Efter tvättning och torkning erhålles ett starkt fuktutbyteselement huvudsakligen bestående av silika-aerogel på en matris av papper av oorganiska fibrer. Vid detta förfarande bringas silika-aerogel att häfta kraftigt vid de oorganiska fibrerna och även fastna i öppningarna mellan papperets fibrer, så att man erhåller ett element med bättre fuktutbytesförmåga och större fysikalisk hållfasthet än när kommersiellt tillgängligt fint pulver av silika-aerogel bringas att häfta vid papper av oorganiska fibrer.

Såsom exempel på aerogeler med fuktadsorberande eller gasadsorberande verkan kan man nämna aktivt kol samt adsorptionsmedel av typen aluminiumoxid-gel och kiseldioxid-aluminiumoxid-gel.

Det är ett ändamål med föreliggande uppfinning att åstadkomma ett förfarande för framställning av fuktutbyteselement med förbättrad hållbarhet och hög effektivitet. Enligt uppfinningen bildas en stark bikakestruktur av metallsilikat-aerogel på en porös arkmatis av oorganiska fibrer på samma sätt som

har beskrivits ovan tack vare att adsorptionsmedel bestående av aerogeler av metallsilikater, såsom det ovan nämnda aluminiumsilikatet, lätt bildas i en reaktion mellan vattenglas och en lösning av ett metallsalt, såsom ett aluminiumsalt.

Vid förfarandet enligt föreliggande uppfinning framställs först ett arkmaterial av ett papper med mycket låg densitet (skrymdensitet högst $0,5 \text{ g/cm}^3$; för ett papper med tjockleken $0,2 \text{ mm}$ är ytvikten högst 100 g/m^2), vars huvudbeståndsdel utgöres av oorganiska fibrer, såsom keramiska fibrer. Ett block med många små kanaler bildas genom att man omväxlande laminerar planskiktsark och vågark av nämnda papper av oorganiska fibrer. Planskiktsarket och vågarket impregneras med vattenglaslösning och upphettas för torkning så att vattenglaslösningen koncentreras före eller efter lamineringen. Laminatet nedsänkes i metallsaltlösning, såsom aluminiumsaltlösning, för bildning av metallsilikat-hydrogel i en reaktion mellan vattenglas och metallsaltet utan förstöring av blockets ursprungliga form med många små kanaler. Överskott av metallsalt och metallsilikat-hydrogel som icke uppbäres på papperet av oorganiska fibrer avlägsnas genom tvättning. Blocket upphettas därefter för torkning, varvid man erhåller ett starkt element av bikaketyyp, vari metallsilikat-aerogel, som utgör huvudbeståndsdel, är fast förbundet med pappermatrisen av oorganiska fibrer. Det sålunda framställda elementet kan användas i fuktutbytesanordningar.

Vid detta förfarande förhindras förlust av vattenglas löst i metallsaltlösning genom att blocket upphettas efter impregneringen med vattenglas och före impregneringen med metallsaltlösning, så att vattenglaslösningen koncentreras till hydratiserat vattenglas med en vattenhalt av 3-30% eller till halvfast tillstånd.

Uppfinningen beskrives närmare nedan under hänvisning till den bifogade ritningen, på vilken

fig 1 schematiskt illustrerar förfarandet enligt föreliggande uppfinning;

fig 2 är en perspektivvy av ett fuktutbyteselement framställt i enlighet med föreliggande uppfinning;

fig 3 och 7 är diagram som jämför avfuktningsegenskaperna hos element enligt föreliggande uppfinning och kända jäm-

förelseelement;

fig 4 och 5 är diagram som visar avfuktningsegenskaperna hos olika element enligt föreliggande uppfinning;

fig 6 är en perspektivvy av en avfuktare innefattande ett sådant element som visas i fig 2, varvid några delar är avlägsnade för tydlighetens skull;

fig 8 är ett diagram som visar värmeväxlareffektiviteten hos element enligt föreliggande uppfinning och ett känt jämförelseelement;

fig 9 är en perspektivvy av ett element av tvärströmstyp; och

fig 10 är en perspektivvy av ett element av motströmstyp.

I figurerna betecknar siffrorna 1 och 2 räfflade valsar, siffran 3 betecknar en pressvals, siffrorna 4 och 5 betecknar anordningar för anbringande av bindemedel, siffrorna 7 och 8 betecknar lågdensitetspapper av oorganiska fibrer, siffran 18 betecknar matarluft, siffran 19 betecknar desorberingsluft, och siffran 20 betecknar avfuktad luft.

I fig 1 visas ett par av räfflade valsar 1 och 2 med önskad utsprång längs omkretsen. Dessa valsar griper in i varandra såsom visas i fig 1. En pressvals 3 med slät cylindrisk yta pressas mot den räfflade valsen 2, och valsen 3 roterar med i huvudsak samma omkretshastighet som valsen 2. I fig 1 visas även två anordningar 4 och 5 för anbringande av bindemedel. Dessa anordningar består av bindemedelskärl 4a och 5a samt valsar 4b och 5b för anbringande av bindemedel. De undre delarna av valsarna 4b och 5b doppas ned i bindemedel 6 i kärlen 4a och 5a. Huvudbeståndsdelen i bindemedlet utgöres företrädesvis av vattenglas. Valsen 4b är monterad alldeles under den räfflade valsen 2.

Man utgår från mycket porösa papper 7 och 8, vilka består av 70-90% keramiska fibrer, 5-20% massa och 5-10% bindemedel, och vilka har en tjocklek av 0,1-0,5 mm och en densitet av högst 0,5 g/cm³.

Papperet 7 ledes mellan de räfflade valsarna 1 och 2 så att man erhåller vågpapper 7a. Vågpapperet 7a föres vidare av valsen 2 och bringas i kontakt med valsen 4b, varvid bindemedel 6 anbringas på åsarna av vågpapperet 7a. Vågpapperet 7a och planskiktspapperet 8 föres tillsammans mellan den räfflade valsen 2 och pressvalsen 3, varvid de båda papperen bindes samman

till ett ensidigt korrugerat ark 9. Bindemedel 6 anbringas på åsarna av det ensidigt korrugerade arket 9 med hjälp av valsens 5b i anordningen 5 för anbringande av bindemedel. En cylindrisk bikakematrix 11 med många små kanaler genom båda ändarna (se fig 2) framställs därefter genom att det limmade korrugerade arket 9 lindas omkring en axel 10.

Den cylindriska bikakematrizen 11 nedsänkes i en 20-30%-ig vattenlösning av vattenglas nr 1 (SiO_2 2,1: Na_2O 1) och torkas därefter vid 80-100°C under en timme. Härvid erhålles ett bikakeelement försett med ett skikt av hydratiserat eller halvfäst vattenglas innehållande 3-45 vikt-% vatten. Vikten av vattenglasen är 2-2,5 gånger pappersmatrisens vikt. Bikakeelementet nedsänkes därefter i en 21%-ig vattenlösning av aluminiumsalt under omrörning, varvid aluminiumsilikat-hydrogel bildas på papperet. Genom tvättning avlägsnas det såsom biprodukt bildade natriumsaltet, överskott av aluminiumsalt och aluminiumsilikat-hydrogel som icke uppbäres av papperet. Genom upphettning och torkning erhålles ett avfuktningselement, vars huvudbeståndsdel utgöres av aluminiumsilikat-aerogel.

I det ovan beskrivna exemplet nedsänkes den cylindriska bikakematrizen 11 i aluminiumsaltlösning efter det att den har nedsänkts i en vattenlösning av vattenglas och upphettats för torkning av vattenglaslösningen. Enligt en annan utföringsform nedsänkes papperen 7 och 8 av keramiska fibrer i vattenglaslösning, varefter de torkas till en lämplig vattenhalt så att ytan blir något klibbig innan man genomför korrugeringsförfarandet. Vid denna utföringsform kan en del av det något klibbiga vattenglasen användas såsom bindemedel vid framställning av det ensidigt korrugerade arket 9. Den framställda cylindriska bikakematrizen 11 torkas på nytt och nedsänkes i aluminiumsaltlösning för framställning av aluminiumsilikat-hydrogel. De papper som användes är papper av oorganiska fibrer. Såsom huvudbeståndsdel i dessa papper kan man icke endast använda de ovan nämnda keramiska fibrerna utan även glasfibrer, mineralfibrer, kolfibrer och blandningar därav.

Tabell 1

Vattenglas ($\text{Na}_2\text{O} \cdot n\text{SiO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$) enligt japansk industristandard			
	Nr 1	Nr 2	Nr 3
Specifik vikt ($^{\circ}\text{Bé}$ vid 15°C)	-	≥ 54	≥ 40
SiO_2 (%)	35-38	34-36	28-30
Na_2O (%)	17-19	14-15	9-10
Fe (%)	$\leq 0,03$	$\leq 0,03$	$\leq 0,02$
Vattenlösligt material (%)	$\leq 0,2$	$\leq 0,2$	$\leq 0,2$

Såsom vattenlösligt aluminiumsalt användes aluminiumsulfat, aluminiumnitrat, primärt aluminiumfosfat eller aluminiumklorid, vilka alla är kommersiellt tillgängliga till rimligt pris. Eftersom vattenlösliga kalciumsalter och magnesiumsalter också reagerar med vattenglas under bildning av silikatgeler, har man också provat kalciumnitrat, kalciumklorid, magnesiumsulfat och magnesiumklorid.

I fig 3 visas de jämviktsmängder av vattenånga som adsorberas vid normal temperatur (25°C) av kommersiellt tillgängligt silikagel A och av silikatgeler framställda enligt föreliggande uppfinning genom omsättning av hydratiserat vattenglas med 20%-iga lösningar av aluminiumsulfat, primärt aluminiumfosfat, aluminiumnitrat, aluminiumklorid, kalciumnitrat, kalciumklorid, magnesiumsulfat och magnesiumklorid upphettade till $60-70^{\circ}\text{C}$. Nedan anges de jämviktsmängder av vattenånga som adsorberas av dessa aerogeler vid en relativ fuktighet av 75%.

aluminiumsulfat	37,6%
kommersiellt tillgängligt silikagel A	31 %
primärt aluminiumfosfat	30,1%
aluminiumnitrat	23,7%

magnesiumsulfat	23,5%
magnesiumklorid	18,7%
aluminiumklorid	17,2%
kalciumnitrat	13,9%
kalciumpklorid	13,0%

Alla aluminiumsalter förutom aluminiumklorid uppvisar en fuktadsorberande förmåga som icke är sämre än den fuktadsorberande förmågan av kommersiellt tillgängligt silikagel A, och de är tillräckligt verksamma för att kunna användas i avfuktare. Magnesiumsalterna och kalciumsalterna kan användas i värmeväxlare. Bland aluminiumsalterna uppvisar aluminiumklorid en låg fuktadsorberande förmåga jämfört med de andra aluminiumsalterna. Detta beror möjligen på att aluminiumklorid hydrolyseras och att därför den reaktion som ger aluminiumsilikat-gel icke är fullständig.

Natriumsulfat bildas såsom biprodukt när matrisen nedsänkes i vattenglaslösning och sedan behandlas med aluminiumsulfat. När aluminiumsulfat successivt sättes till samma moderlut, ökar andelen natriumsulfat i vätskan. För att undersöka verkan av natriumsulfat genomfördes ett försök liknande de ovan beskrivna med användning av en lösning innehållande 19% aluminiumsulfat och 8,5% natriumsulfat. Av det i fig 3 visade resultatet framgår, att $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 + \text{Na}_2\text{SO}_4$ ger exakt samma resultat som enbart aluminiumsulfat. Även om mängden natriumsulfat ökar i moderluten, är det sålunda tydligt att natriumsulfatet icke alls påverkar det framställda elementets egenskaper.

Silikagel A, som är det vanliga silikagelet, har en kraftig fuktadsorberande förmåga. Silikagel B, som är ett silikagel med liten specifik yta, adsorberar stora mängder fukt vid höga relativa fuktigheter.

I nedanstående tabell anges egenskaperna hos de kommersiellt tillgängliga silikagelerna A och B.

	<u>Silikagel A</u>	<u>Silikagel B</u>
Specifik vikt	2,2 - 2,3	2,2 - 2,3
Skrymdensitet (kg/m ³)	650 - 850	700 - 800
Porositet	0,4 - 0,45	0,5 - 0,6
Specifik yta (m ² /g)	500 - 750	250 - 350
Genomsnittlig pordiameter (Å)	20 - 30	50 - 60
Fuktadsorption (%) vid en relativ fuktighet av		
20%	10 - 13	4 - 6
50%	25 - 30	7 - 16
90%	34 - 40	40 - 75

I fig 4 visas jämviktsmängden av adsorberad vattenånga vid 25°C per m² papper av keramiska fibrer, varpå adsorberande gel har fixerats på ovan beskrivet sätt genom impregnering med vattenglas och efterföljande behandling med aluminiumsulfatlösning vid 60-70°C och vid normal temperatur, med 19-21%-iga lösningar av aluminiumklorid, primärt aluminiumfosfat, aluminiumnitrat, magnesiumsulfat, magnesiumklorid, kalciumnitrat och kalciumklorid vid 60-70°C, och med en lösning innehållande 19% aluminiumsulfat och 8,5% natriumsulfat vid 60-70°C.

I fig 5 visas jämviktsmängderna i vikt-% av adsorberad vattenånga vid 25°C i avfuktningsselement och i värmeväxlarelement framställda på ovan beskrivet sätt genom omsättning av vattenglas med aluminiumsulfatlösning vid 60-70°C och vid normal temperatur, och med lösningar av primärt aluminiumfosfat, aluminiumnitrat, aluminiumklorid, magnesiumsulfat, magnesiumklorid, kalciumklorid, kalciumnitrat och aluminiumsulfat-natriumsulfat-blandning vid 60-70°C, varvid alla dessa lösningar har de ovan angivna koncentrationerna.

I fig 6 visas en avfuktare innefattande det i fig 2 visade cylindriska avfuktningsselementet 11. Avfuktningsselementet 11 roteras i ett hölje 12, som medelst ett separerande organ 13 är uppdelat i en arbetszon 14 och en regenereringszon 15. Avfuktningsselementet roteras med hjälp av en kuggväxelmotor 16 och

en drivrem 17. Mycket fuktig matarluft 18 ledes in i arbetszonen 14, och varm och mindre fuktig desorberingsluft 19 ledes in i regenereringszonen 15, varvid luften 18 avfuktas och torr luft 20 erhålles. I fig 6 betecknar siffran 21 en remskiva, siffran 22 betecknar en spännrulle, siffran 23 betecknar tätningsgummi, och siffran 24 betecknar en upphettningssanordning för desorberingsluften.

Man konstruerade två sådana avfuktare som visas i fig 6 med användning av två olika avfuktningselement. Det ena avfuktningselementet framställdes på det sätt som visas i fig 1, varvid papper av keramiska fibrer formades till ett ensidigt korrugerat ark 9 med en våglängd av 3 mm och en våghöjd av 2 mm. Detta ark rullades till ett element med en diameter av 320 mm och en tjocklek av 200 mm. Elementet nedsänktes först i vattenglaslösning och sedan i aluminiumsulfatlösning. Det andra avfuktningselementet framställdes enligt känd teknik genom att samma papper av keramiska fibrer formades till ett element med samma dimensioner, varpå elementet impregnerades med 8 vikt-% (räknat på det formade blocket) litiumklorid såsom adsorptionsmedel. I fig 7 visas sambandet mellan den absoluta fuktigheten (g/kg) i matarluften 18 vid inloppet och den absoluta fuktigheten i matarluften vid utloppet, när försöksbetingelserna var följande. Matarlufte 18 och desorberingsluften 19 hade en hastighet av 2 m/s framför elementet. Förhållandet mellan mängden desorberingsluft och mängden matarluft per tidsenhet var 1:3. Elementet roterade med en hastighet av 18 varv/h. Matarlufte hade en temperatur av 20°C vid inloppet, och desorberingsluften hade en temperatur av 140°C vid inloppet. Den absoluta fuktigheten av desorberingsluften vid inloppet var densamma som den absoluta fuktigheten av matarlufte vid inloppet.

I fig 8 visas värden på värmeväxlareffektiviteten (totalt värmeutbyte) vid användning av tre olika värmeväxlarelement roterande med en hastighet av 12 varv/min. Lufthastigheten framför elementen varierades mellan 1 och 4 m/s. Två av elementen framställdes i enlighet med föreliggande uppfinning genom att bikakematriser enligt ovan impregnerades med vattenglas och aluminiumsulfat resp med vattenglas och magnesiumsulfat. Det tredje elementet framställdes enligt känd teknik genom att sam-

ma bikakematrix impregnerades med 3 vikt-% litiumklorid.

Av ovanstående försöksresultat framgår, att tillräcklig adsorptionsförmåga för ett avfuktningselement erhålles vid användning av aluminiumsulfat, primärt aluminiumfosfat eller aluminiumnitrat. Vid användning av aluminiumklorid, magnesiumsalter eller kalciumsalter var det erhållna elementet icke tillräckligt adsorberande för att kunna användas i avfuktare, men det var tillräckligt adsorberande för att kunna användas i värmeväxlare.

Vattenglas, som har god kemisk affinitet till oorganiska fibrer, kommer vid genomförande av förfarandet enligt uppfinningen icke endast att väta ytan av papperet av oorganiska fibrer utan även att tränga djupt in i hålligheterna mellan de oorganiska fibrerna. Vattenglaset reagerar sedan med vattenlösliga metallsalter, såsom aluminiumsalter, under bildning av silikatgeler. Silikat-hydrogelerna kommer därför att bindas kraftigt även i det inre av matrisen av lågdensitetspapperet av oorganiska fibrer. Särskilt när vattenglaset får reagera med metallsaltet efter det att det anbragta vattenglaset har koncentrerats och torkats till bildning av hydratiserat vattenglas i halvfast tillstånd med en vattenhalt av 5-45%, kommer halten SiO_2 i vattenglaset att vara 50-70% innan vattenglaset omvandlas till gel, och vattenhalten i det erhållna silikat-hydrogelet blir 40-50%. Gelet kommer därför att bli starkt, och det kommer att bindas tillräckligt kraftigt till papperet av oorganiska fibrer. Det föreligger därför ingen risk för att det till papperet av oorganiska fibrer bundna hydrogelet skall falla av papperet vid tvättning med vatten efter reaktionen. Det på detta sätt bildade hydrogelet torkas dessutom till bildning av ett aerogel innehållande 40-50 vol-% mycket små porer, och det krymper knappast alls under torkningen. Aerogelet uppvisar därför inga sprickor, och det kan icke sönderbrytas till små bitar. Man erhåller ett starkt aerogel som är kraftigt bundet till papperet.

Eftersom man vid tidigare framställning av fuktutbyteselement har använt organiska eller oorganiska bindemedel utan fuktadsorberande förmåga, bidrager de delar som är belagda med bindemedel icke alls till elementets fuktadsorption, och elemen-

tets effektiva yta minskas med 10-20%. Vid förfarandet enligt föreliggande uppfinning kan man emellertid använda vattenglas såsom bindemedel vid lamineringsprocessen för framställning av matrisen. Detta vattenglas omvandlas till silikat-aerogel tillsammans med det vattenglas varmed hela elementet impregneras. Genom att allt vattenglas reagerar med metallsaltet minskas icke adsorptionsförmågan hos elementet av oorganiska fibrer. Elementet enligt uppfinningen har sålunda en 10-20% bättre fuktadsorberande förmåga än förut kända element. Det vid förfarandet enligt uppfinningen framställda fuktutbyteselementet har en utmärkt fuktadsorberande förmåga, vilket framgår av de ovan angivna försöksresultaten. Fuktutbyteselementet enligt föreliggande uppfinning kan icke endast vara av rotationstyp såsom visas i fig 2, utan det kan också vara av tvärströmstyp, såsom visas i fig 9, eller av motströmstyp, såsom visas i fig 10.

P a t e n t k r a v

1. Förfarande för framställning av ett fuktutbyteselement, kä n n e t e c k n a t a v att planskiktsark och vågark av lågdensitetspapper, vars huvudbeståndsdel utgöres av oorganiska fibrer valda bland keramiska fibrer, glasfibrer, mineralfibrer, kolfibrer och blandningar därav, lamineras omväxlande till bildning av en matris med många små kanaler; att papperet impregneras med vattenglas före eller efter nämnda lamineringsprocess; att den formade matrisen upphettas och torkas för koncentrerat av vattenglas till hydratiserat vattenglas med en vattenhalt av 5-45% eller halvfast tillstånd; att den formade matrisen nedsänkes i en vattenlösning av ett metallsalt valt bland aluminiumsalter, magnesiumsalter och kalciumsalter till bildning av silikat-hydrogel på papperet; och att den formade matrisen och silikat-hydrogelet tvättas och torkas till bildning av ett element, vars huvudbeståndsdel utgöres av silikat-aerogel avsatt på matrisen av oorganiska fibrer.
2. Förfarande enligt krav 1, kä n n e t e c k n a t a v att silikatet är aluminiumsilikat.
3. Förfarande enligt krav 1, kä n n e t e c k n a t a v att silikatet är kalciumsilikat.
4. Förfarande enligt krav 1, kä n n e t e c k n a t a v att silikatet är magnesiumsilikat.
5. Förfarande enligt krav 1, kä n n e t e c k n a t a v att vattenglaslösning användes såsom bindemedel vid lamineringsprocessen, och att nämnda vattenglas användes för att bilda silikat-hydrogel tillsammans med metallsaltet.

Fig. 1

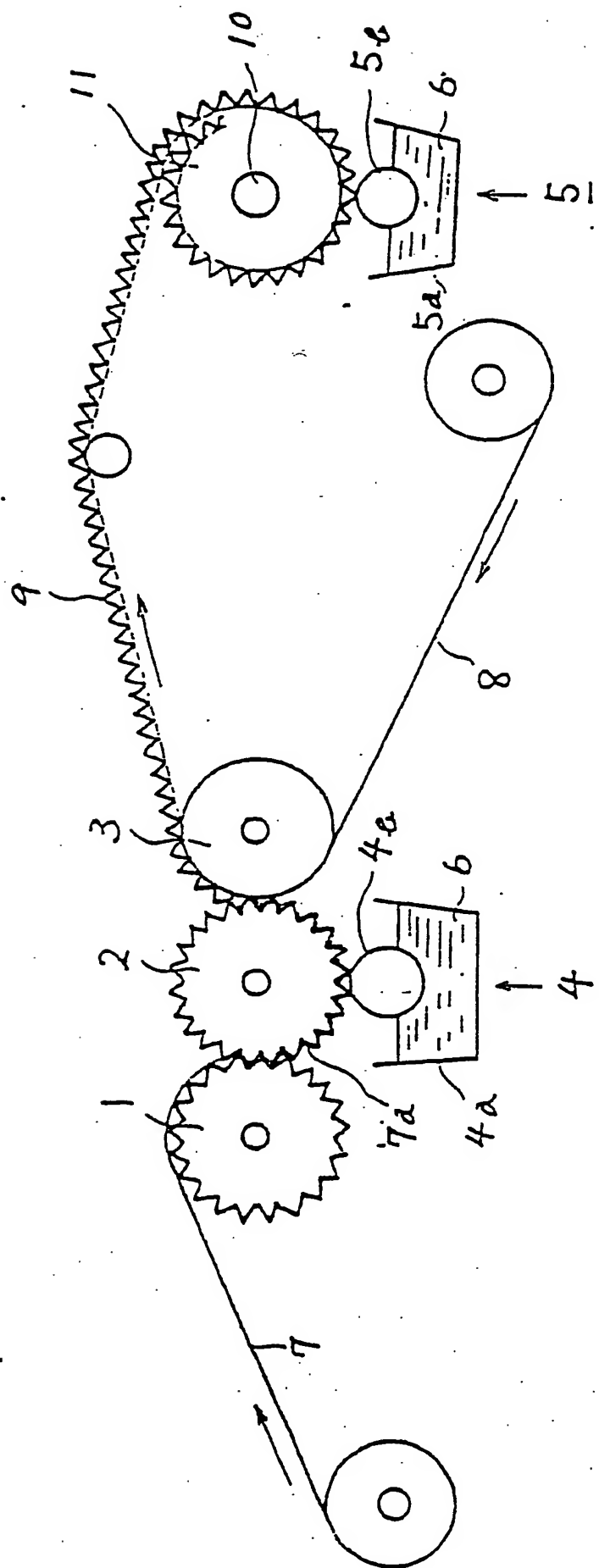


Fig. 2

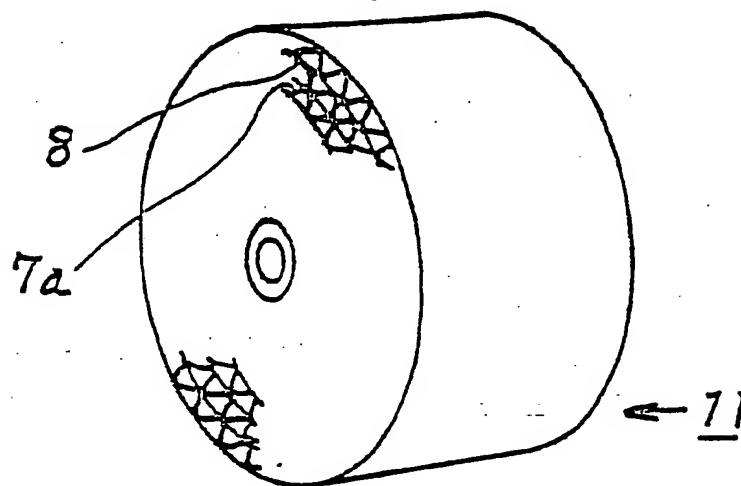


Fig. 3

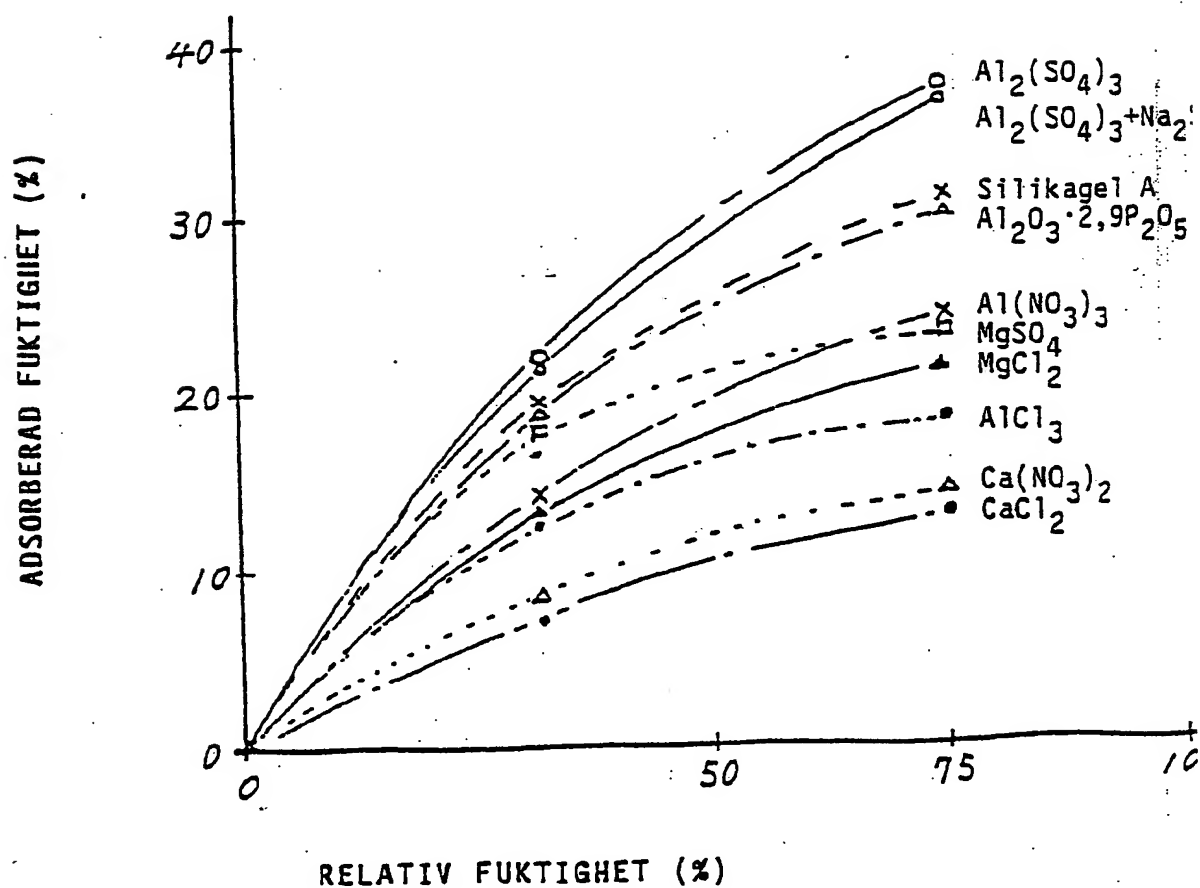


Fig. 4

462 671

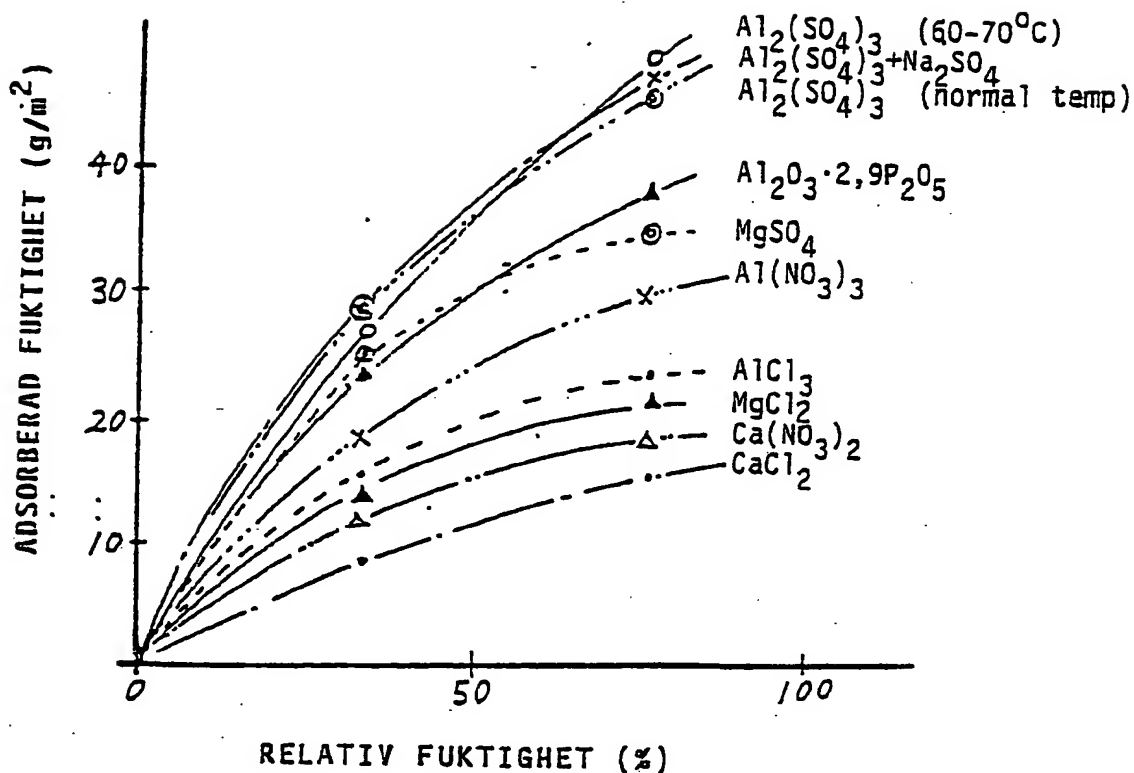


Fig. 5

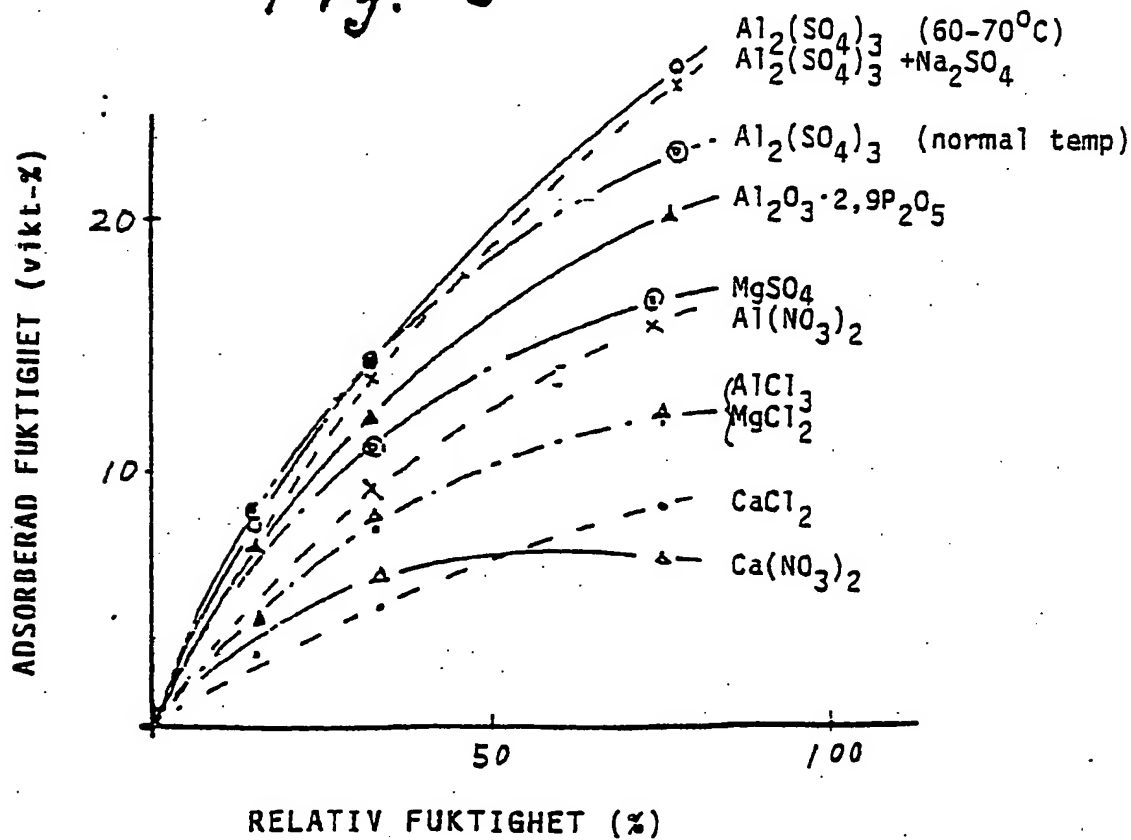
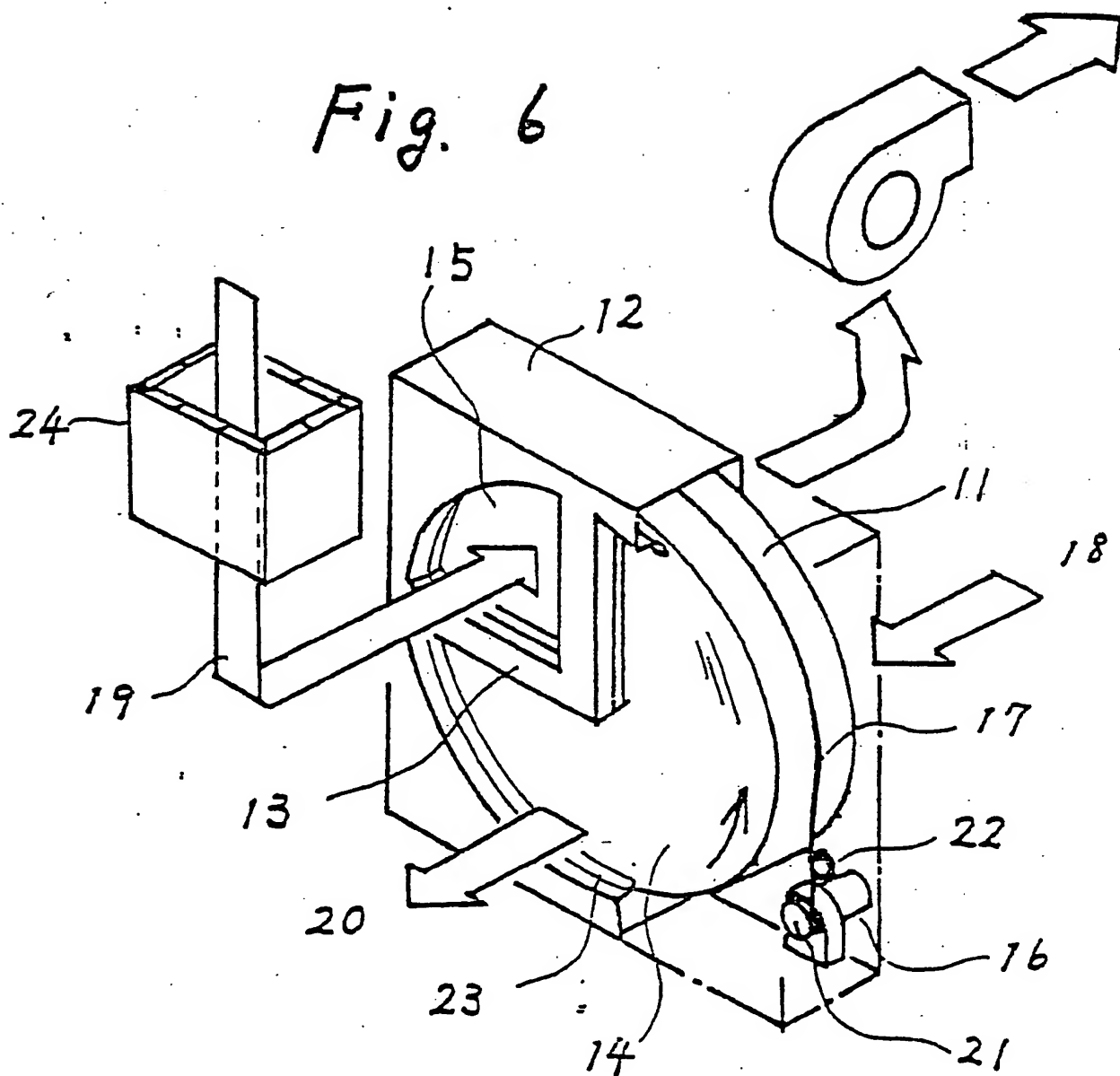


Fig. 6



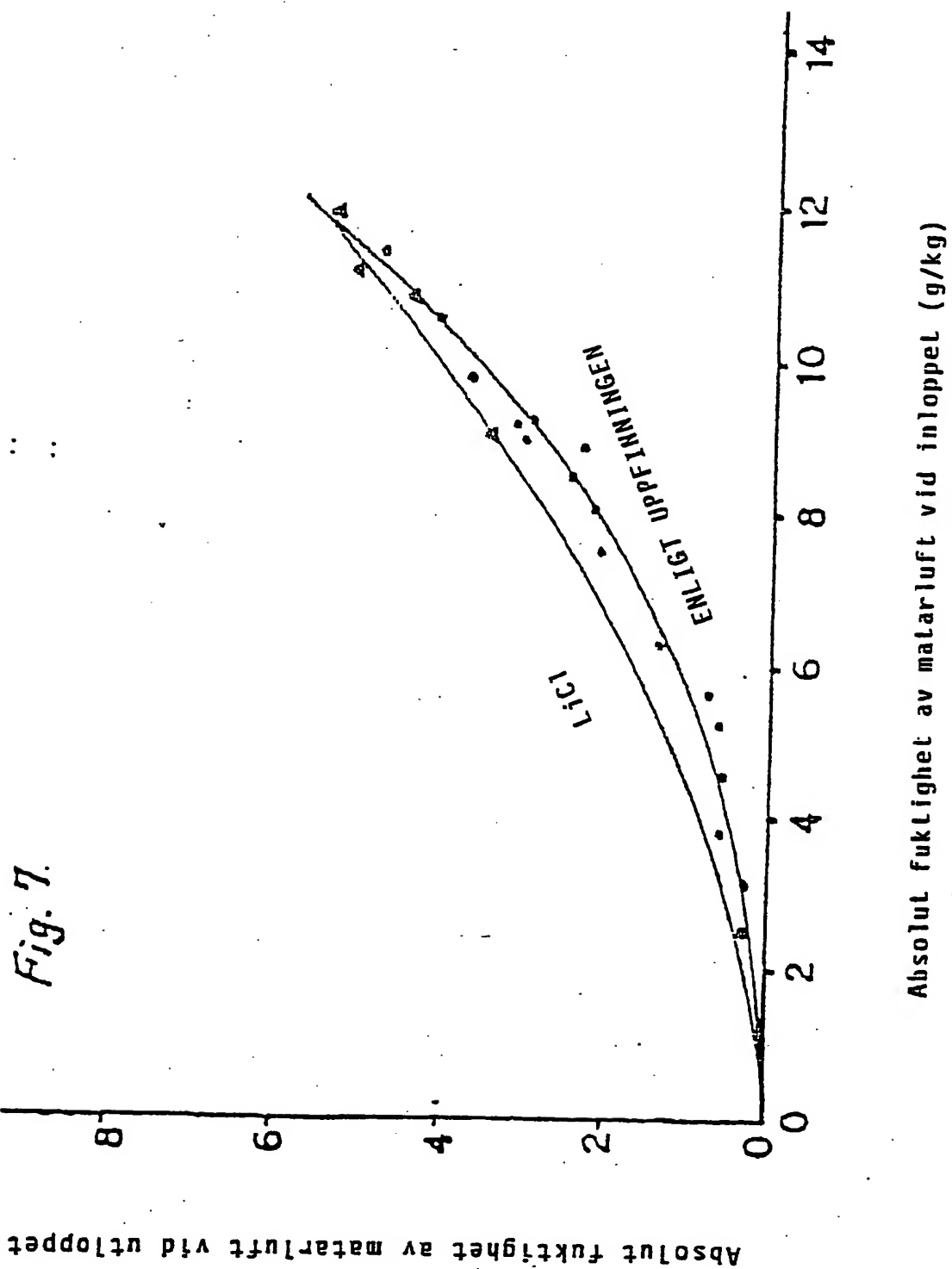


Fig. 8

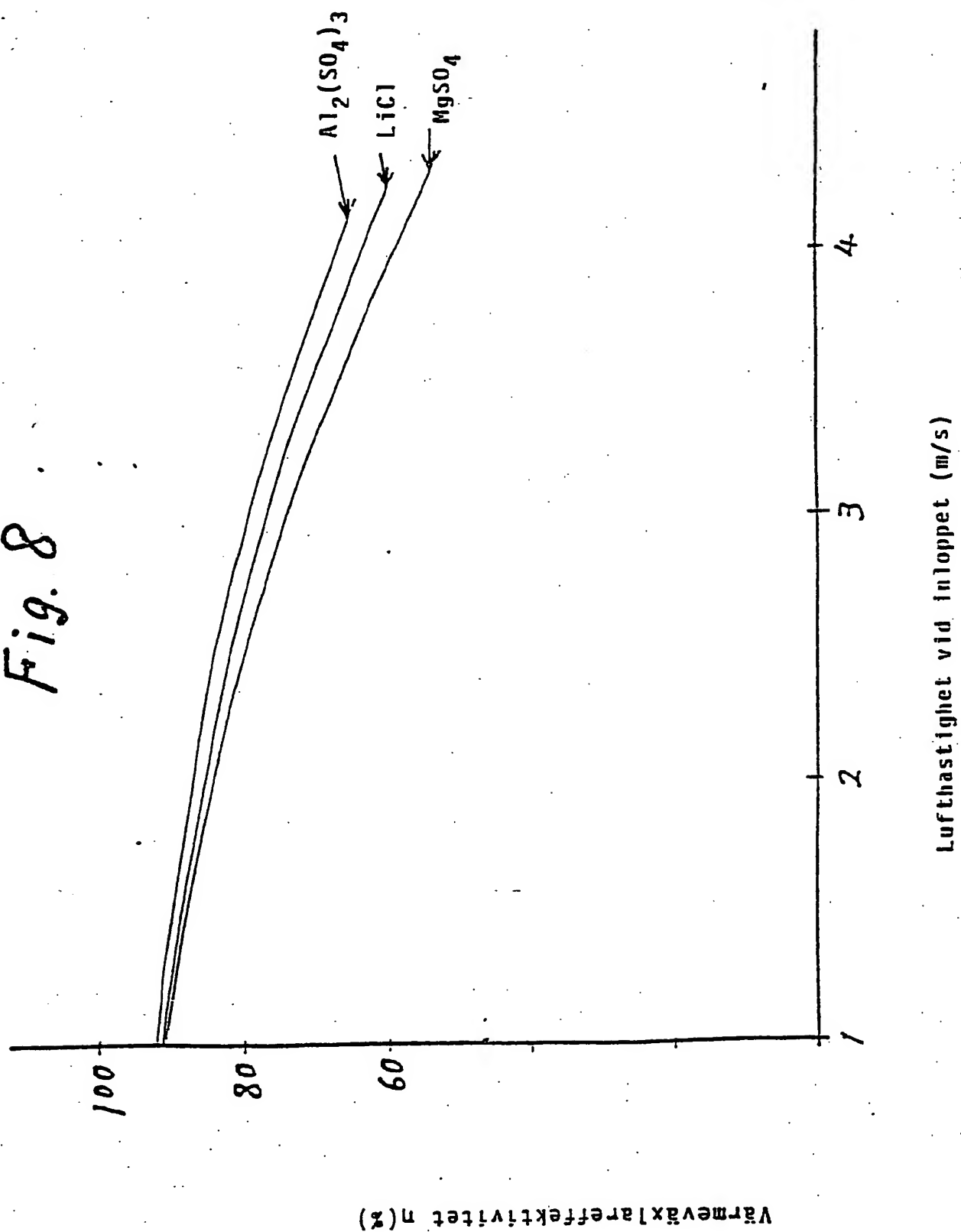


Fig. 9

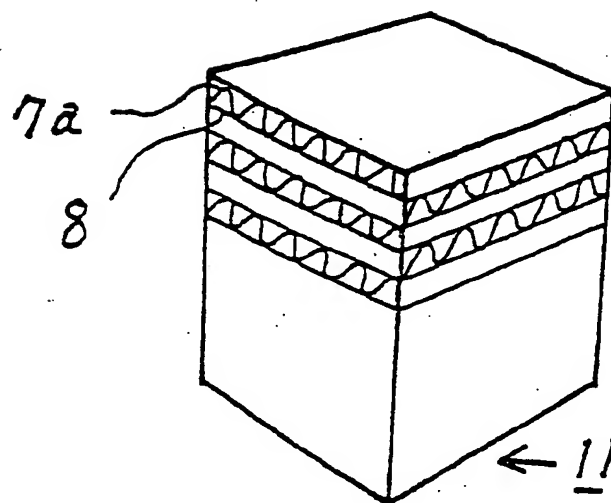


Fig. 10

